

浮区中相变对流和毛细对流 对分凝过程的影响

熊 斌 胡文瑞

中国科学院力学研究所, 北京 100080

(1991年11月13日收到; 1992年10月21日收到修改稿)

本文用“迎风有限元”法研究了在微重力条件下包含热毛细对流、相变对流及热和浓度扩散过程的浮区晶体生长过程, 特别是半导体晶体生长的分凝效应. 分析了不同典型参数条件下的流场、温度场、浓度场、熔化界面及固化界面形状, 着重讨论了不同条件下的分凝过程. 结果表明, 相变对流对分凝有影响. 它使固化界面处的杂质浓度增大, 增大晶体的生长速度会使熔区变小, 使固化界面变得平坦, 使熔化界面变尖凸, 使分凝程度增大.

PACC: 4725Q, 8110H, 6822, 6810

一、引言

作为晶体生长的一种有效手段, 悬浮区熔法近年来倍受重视^[1]. 浮区中的温度梯度、杂质掺和的浓度不均匀性及其引起的表面张力, 会导致浮区内的各种对流和扩散. 此外, 熔化和凝固会引起相变对流, 在凝固界面处存在所谓的分凝现象. 要全面研究悬浮区熔法晶体生长过程中的物理现象, 为实际材料加工和实验提供理论依据, 还有许多困难. 数值模拟是克服这一困难的有力方法.

由于问题的复杂性, 人们建立了各种简化模型, 用来研究某些特征参数范围内的物理过程. 关于热毛细对流, 人们常采用无相变的液桥模型^[2,7-8]. 浓度扩散和对流只着眼于流动对浓度分布的影响^[4,7-9,18]. 对于熔化/凝固过程, 人们通常简化对流和相变界面的耦合作用^[10-13]. 稳定性的研究只是针对一些简单基态的特定问题^[14-16].

值得指出的是, 各种对流与相变及热和浓度的传递过程相互耦合. 所以, 大家通常从简单的模型出发, 逐步将问题的各方面综合起来. 1986年, R. A. Brown等研究了浮区内无流动条件下的传热和相变^[12]. 1990年 S. Ostrach等对稳定材料进行了类似的研究. 1990年 S. Kou等^[12]和胡文瑞等^[10]比较全面地考虑了相变界面和浮区对流传热的耦合作用.

关于浓度扩散和对流, 1976年 W. R. Wilcox等计算了两圆柱端面间的稳态结果^[7]. 1988年 P. Lee等对各种重力条件下的浓度对流进行了数值模拟, 对一些特定的 Rayleigh 数, 得到了方程的分歧解. 在这些工作中, 浓度在熔化界面处的边界条件是导数

条件,即

$$D \frac{\partial c}{\partial n} = U_{pm}(c - c_s), \quad (1)$$

这样做的结果是,浓度在熔化界面处有间断,间断值随 Schmidt 数增大而增大.为了使熔化界面处的浓度值连续,可采用另一种浓度条件,

$$c = c_s, \quad (2)$$

游仁然等讨论了在上述两种条件下的浓度场^[4].

本文的目的是研究微重力条件下浮区中的相变对流、热毛细对流与分凝过程的耦合作用,它是在我们分别对双扩散过程^[4]及相变/热毛细对流^[10]的结果的基础上,对浮区晶体生长过程进行更深入的研究.本文的模型考虑了微重力条件下,用热辐射线圈加热,稳态、轴对称的浮区晶体生长过程.结果表明,采用式(2)浓度条件时,相变对流对径向分凝有明显影响.第二节讨论问题的物理模型及数学描述.第三节是计算结果.最后是讨论.

二、控制方程和边界条件

分析如图 1 所示的浮区系统,其中,上面为生长的单晶,下面是熔化的多晶.悬浮区靠表面张力来维持.考虑热辐射加热方式,采用“迎风有限元”法来模拟不同参数条件下,熔区和固区内的温度分布、熔区内的流场和浓度场以及相变边界位形.本文讨论定常、轴对称情形,采用浓度边界条件(2)式.假设单晶、多晶和熔体具有相同的热物理性质.将柱坐标系建立在加热线圈.单晶的凝固速度和多晶的熔化速度均为 V_s .

整个计算域包括单晶区、多晶区和熔区.熔区、单晶区和多晶区内的温度方程,熔区内的流动方程、相变界面方程及边界条件均与文献[10]相同;熔区内的浓度方程及其边界条件与文献[4]相同.忽略熔区自由面的变形,引进无量纲量

$$\xi = r/R_0, \eta = Z/R_0, U = u/U_0, W = w/V_0, p = p/\rho U_0^2, \quad (3)$$

$$\theta = (T - T_m)/\Delta T, \theta_1 = (T_1 - T_m)/\Delta T, \theta_2 = (T_2 - T_m)/\Delta T, C = c/c_s,$$

其中,有量纲量(u, w)为(r, z)方向的速度; T, T_1, T_2 分别为熔区、单晶区和多晶区内的温度; c 为浓度; c_s 为多晶区内的杂质浓度; $U_0 = |\sigma_T| \cdot \Delta T / \mu$ 为特征速度, σ_T 为热表面张力系数, μ 为熔体的粘度; $\Delta T = T_0 - T_m$ 为特征温差, T_0 为加热线圈的温度; T_m 为熔点.定义流函数和涡度

$$\begin{cases} W = \frac{1}{\xi} \frac{\partial(\xi\Psi)}{\partial \xi}, U = -\frac{\partial \Psi}{\partial \eta}, \end{cases} \quad (4)$$

$$\Omega = \frac{\partial U}{\partial \eta} - \frac{\partial W}{\partial \xi}, \quad (5)$$

不难得到无量纲的方程组为

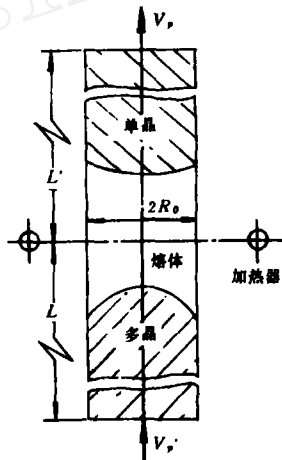


图1 悬浮熔区法晶体生长的装置示意图

$$\left\{ \begin{aligned} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \Psi}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \eta^2} - \frac{\Psi}{\xi^2} &= -\Omega, \end{aligned} \right. \quad (6)$$

$$\text{Re} \left[\frac{\Omega}{\xi} \frac{\partial \Psi}{\partial \eta} + \frac{1}{\xi} \frac{(\xi \Psi)}{\partial \xi} \frac{\partial \Omega}{\partial \eta} - \frac{\partial \Psi}{\partial \eta} \frac{\partial \Omega}{\partial \xi} \right] = \frac{\partial^2 \Omega}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \Omega}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \Omega}{\partial \eta^2} - \frac{\Omega}{\xi^2}, \quad (7)$$

$$M_a \left[\frac{1}{\xi} \frac{(\xi \Psi)}{\partial \xi} \frac{\partial \theta}{\partial \eta} - \frac{\partial \Psi}{\partial \eta} \frac{\partial \theta}{\partial \xi} \right] = \frac{\partial^2 \theta}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \theta}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial \eta^2}, \quad (8)$$

$$Pe_s \left[\frac{1}{\xi} \frac{\partial(\xi \Psi)}{\partial \xi} \frac{\partial C}{\partial \eta} - \frac{\partial \Psi}{\partial \eta} \frac{\partial C}{\partial \xi} \right] = \frac{\partial^2 C}{\partial \xi^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial C}{\partial \xi} + \frac{\partial^2 C}{\partial \eta^2}, \quad (9)$$

$$Pe_i \frac{\partial \theta_i}{\partial \eta} = \frac{\partial^2 \theta_i}{\partial \xi^2} + \frac{\partial^2 \theta_i}{\partial \eta^2} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial \theta_i}{\partial \xi} \quad (i = 1, 2), \quad (10, 11)$$

边界条件为

$$\left\{ \begin{aligned} \xi = 0: \Psi = 0, \Omega = 0, \frac{\partial \theta}{\partial \xi} = 0, \frac{\partial C}{\partial \xi} = 0, \frac{\partial \theta_1}{\partial \xi} = 0, \frac{\partial \theta_2}{\partial \xi} = 0, \end{aligned} \right. \quad (12)$$

$$\xi = 1: \Psi = 0, \Omega = \frac{\partial \theta}{\partial \eta}, \frac{\partial C}{\partial \xi} = 0,$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial \xi} = -Bi[(\theta + T_m/\Delta T)^4 - (T_0/\Delta T)^4]f(\eta),$$

$$\frac{\partial \theta_1}{\partial \xi} = -Bi_1[(\theta_1 + T_m/\Delta T)^4 - (T_0/\Delta T)^4]f(\eta),$$

$$\frac{\partial \theta_2}{\partial \xi} = -Bi_2[(\theta_2 + T_m/\Delta T)^4 - (T_0/\Delta T)^4]f(\eta), \quad (13)$$

$$\eta = S_1(\xi): \Psi = V_p \cdot \xi/2, \Omega = -\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \eta^2}, \theta = 0, \frac{\partial C}{\partial \eta} = Pe_s \cdot V_{pn}(1 - K_0)C, \theta_1 = 0, \quad (14)$$

$$\eta = S_2(\xi): \Psi = V_p \cdot \xi/2, \Omega = -\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \eta^2}, \theta = 0, C = 1, \theta_2 = 0, \quad (15)$$

$$\eta = l: \theta_1 = \theta_{\infty 1}, \quad (16)$$

$$\eta = -l: \theta_2 = \theta_{\infty 2}, \quad (17)$$

无量纲的 Stefan 方程为

$$\frac{\partial \theta_i}{\partial \eta} - \delta_i \frac{\partial \theta}{\partial \eta} = \pm \frac{\text{Ste}_i |V_{p_i}|}{\sqrt{1 + (ds/d\xi)^2}} \quad (i = 1, 2) \quad (18)$$

无量纲的物理控制量为

$$\begin{aligned} Re &= R_0 U_0 / \nu, Ma = R_0 U_0 / \alpha, Pe_s = R_0 U_0 / D, Pe_i = V_p \cdot R_0 / \alpha_i, \\ \text{Ste}_i &= \Delta H i \cdot \rho \cdot R_0 U_0 / K_i (T_0 - T_m), \delta_i = K / K_i, Bi = f_0 R_0 \epsilon^* \sigma^* (T_0 - T_m)^3 / K, \\ Bi_1 &= f_0 R_0 \epsilon_1^* \sigma^* (T_0 - T_m)^3 / K_1, Bi_2 = f_0 R_0 \epsilon_2^* \sigma^* (T_0 - T_m)^3 / K_2, \\ &\quad (i = 1, 2) \end{aligned} \quad (19)$$

其中, α, α_1 和 α_2 分别为熔体、单晶和多晶的热扩散率; K, K_1 和 K_2 分别为熔体、单晶和多晶的热传导系数; ΔH 为熔化潜热; ϵ^* 为热辐射黑度; σ^* 为 Stefan-Boltzmann 常数; D 为杂质在熔体中的扩散率; $\eta = S_1(\xi)$ 和 $\eta = S_2(\xi)$ 分别为凝固界面和熔化界面方程; k_0 为凝固系数; $V_{pn} = V_p / \sqrt{1 + (ds/d\xi)^2}$ 为沿相变界面的凝固和熔化速度; n 为相变界面的法向单位矢量, 指熔区内部。

由于浓度毛细力远小于热毛细力^[7,8,17],本文忽略了浓度毛细力的作用,既着重考虑熔区内的双扩散作用.我们选择了掺杂有少量杂质的半导体材料硅为介质,有关硅的热物理参数和生长条件见表 1.

表 1 晶体硅的热物理性质和生长参数

密度 ρ	$2.44 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$
热容 C_p	$1.49 \times 10^3 \text{ J/kg} \cdot ^\circ\text{C}$
热导率 K	$43.0 \text{ W/m} \cdot ^\circ\text{C}$
熔点 T_m	1688 K
熔化潜热 ΔH	$1.803 \times 10^6 \text{ J/kg}$
热表面张力系数 σ_T	$-1 \times 10^{-4} \text{ kg/s}^2 \cdot ^\circ\text{C}$
杂质的扩散系数 D	$2.50 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$
熔体的粘度 μ	$8.25 \times 10^{-4} \text{ kg/m} \cdot \text{s}$
热辐射黑度 ϵ^*	0.3
加热线圈的温度 T_0	$1638 + 844 \text{ K}$
出口端的温度 T_∞	1304 K
晶棒半径 R_0	$5 \times 10^{-3} \text{ m}$
晶棒长度 L	$4 \times 10^{-2} \text{ m}$
晶体的生长速度 V_p	$0.5 \times 10^{-4} \text{ m/s}$

三、数值模拟的结果

在上述控制方程和边界条件下,我们采用“迎风有限元”法进行求解.熔区、单晶区和多晶区各被分成 12×24 的四边等参单元,在边界处的网格进行了适当的加密.具体方法参见文献[10]和[19].计算的相对误差为 0.5%.

给定分凝系数 $k_0 = 0.5$,改变晶体的生长速度,我们可得如图 2 所示的结果.对于温度场,图中每相邻两条等温线之间的差值为 8.4K.熔区最高温度随生长速度增大而减小,熔区的尺寸也随增长速度的增加而减小,且在较大生长速度条件下更偏向提拉方向一侧.凝固界面在较大生长速度下较平坦,熔化边界较尖凸.

在图 2 所示的流场中,相邻两流线间的差值为 $2.05 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$.随着生长速度增大,靠近凝固边界处的涡区变大,靠近熔化边界处的变小,流场变不对称.

每两条相邻等浓度线间的差值为 $0.02c_s$,在熔化边界处,浓度为 $c = c_s$.在较小生长速度条件下,熔区内的浓度梯度较小,分布较均匀.随着生长速度增大,浓度最大值增大,最大值总出现在凝固边界和中心轴的交点处.图 3 给出了最大浓度值 c_{\max} 随生长速度 v_p 的变化情况,其中纵坐标为对数座标.所以 c_{\max} 随 v_p 呈指数变化.

图 4(a)、(b)分别是不同生长速度条件下,中心轴和自由表面上的浓度分布.可见,靠近凝固界面处,中心轴上浓度分布呈剧增趋势;且生长速度越大,变化越陡.自由表面上的浓度变化较小.相对地,自由表面浓度分布在熔化界面处出现有间断.

图 5 是不同生长速度时,凝固界面处浓度沿经向的分布.由于热毛细对流,也会产生经向分凝效应,分凝程度随生长速度增大而加强.和文献[4]的相应结果比较,本文计算的分凝效应要更明显,原因是,考虑相变条件下,凝固界面处的涡流增大.

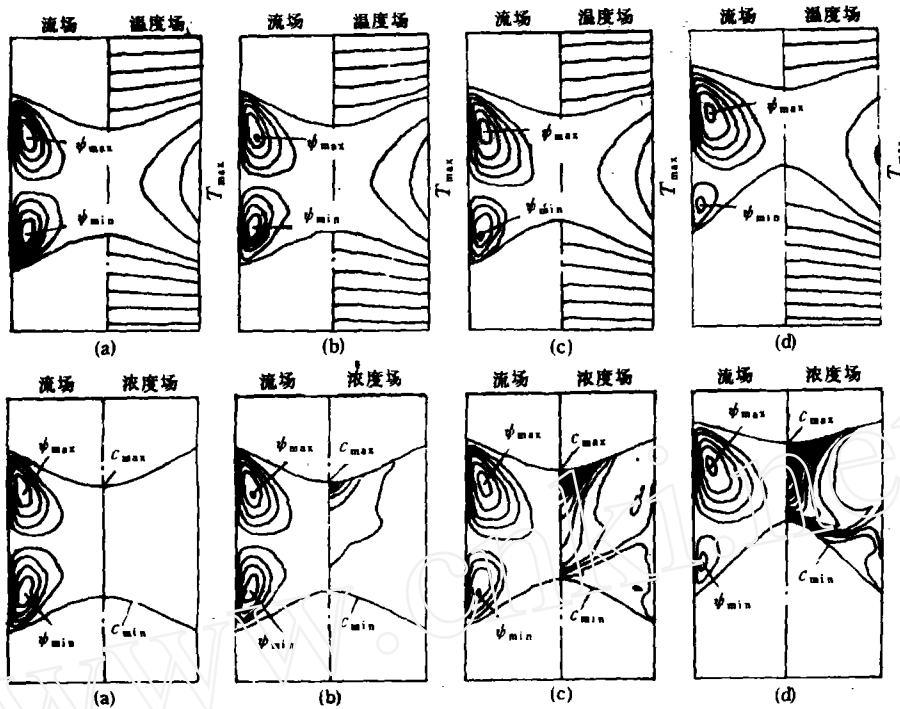
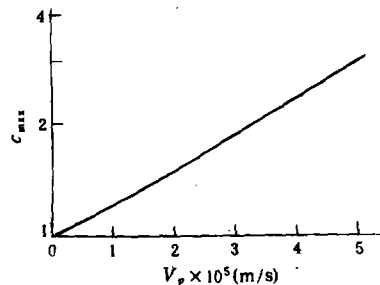


图 2 生长速度对流场、温度场、浓度和相变边界形状的影响

- (a) $v_p = 5.12 \times 10^{-6} \text{ m/s}$; $\psi_{\min} = -9.829 \times 10^{-5}$, $\psi_{\max} = 9.731 \times 10^{-5}$; $c_{\max} = 2.968c_s$, $c_{\min} = c_s$; $T_{\max} = 1712.2 \text{ K}$ (b) $v_p = 5.12 \times 10^{-6} \text{ m/s}$; $\psi_{\min} = -1.029 \times 10^{-4}$, $\psi_{\max} = 9.483 \times 10^{-5}$; $c_{\max} = 1.834c_s$, $c_{\min} = c_s$; $T_{\max} = 1711.8 \text{ K}$ (c) $v_p = 1.53 \times 10^{-4} \text{ m/s}$; $\psi_{\min} = -8.501 \times 10^{-5}$, $\psi_{\max} = 1.172 \times 10^{-4}$; $c_{\max} = 1.206c_s$, $c_{\min} = c_s$; $T_{\max} = 1710.6 \text{ K}$ (d) $v_p = 2.56 \times 10^{-4} \text{ m/s}$; $\psi_{\min} = -5.005 \times 10^{-5}$, $\psi_{\max} = 1.141 \times 10^{-4}$; $c_{\max} = 1.018c_s$, $c_{\min} = c_s$; $T_{\max} = 1705.4 \text{ K}$

图 3 熔区最大浓度值随生长速度的变化关系 ($k_0 = 0.5$)

给定生长速度 $v_p = 5.12 \times 10^{-6} \text{ m/s}$, 改变晶体的分凝系数 k_0 , 可得到不同的浓度值, 如图 6. 等浓线随 k_0 增大而变疏. 在小 k_0 条件下, 浓度变化较大. 图 7(a)、(b) 分别是不同分凝系数时, 中心轴处和自由表面上的浓度分布. 图(8) 是不同分凝系数时, 凝固边界处的经向浓度分布. 在小 k_0 条件, 分凝效应较强. 从具体数值来看, 熔区内的平均浓度比多晶内的浓度值大不了多少, 这就存在如何定义分凝系数的问题. 如果实验能够证明, 所生长出的单晶内的浓度为 $C_{\text{凝固界面}}/k_0$, 那么条件(2)所确定的模型就比较成功.

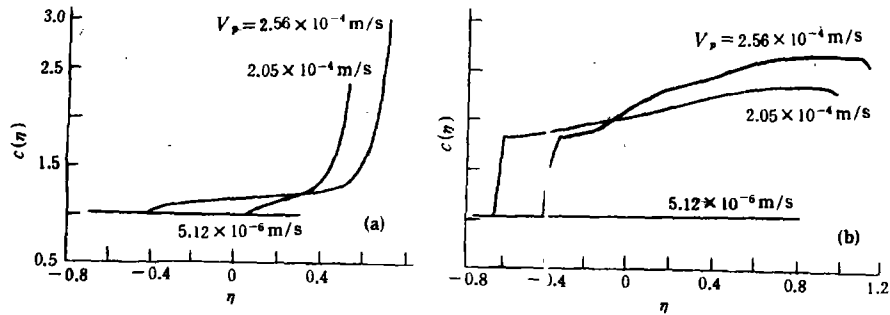


图4 (a)不同生长速度时中心轴上的浓度分布
(b)不同生长速度时自由面上浓度分布

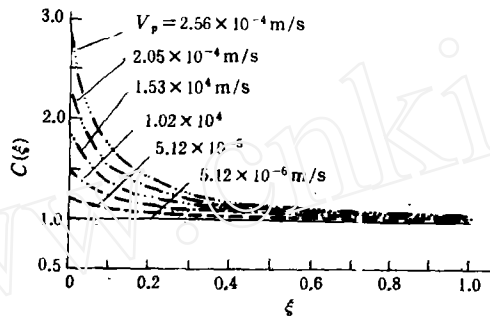


图5 不同生长速度时,凝固界面处沿半径方向的浓度分布

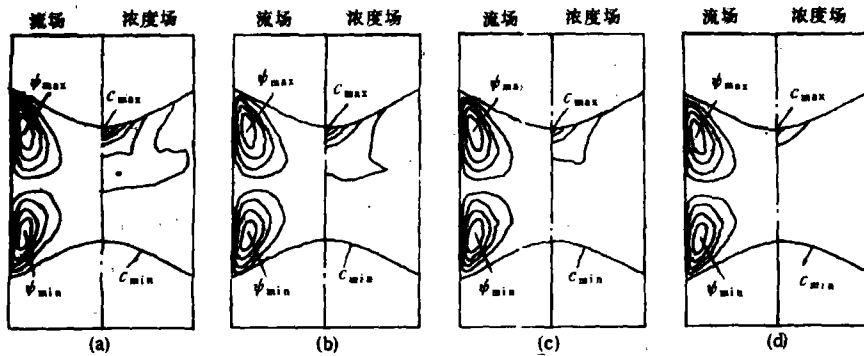


图6 分凝系数对分凝程度的影响 ($v_p = 5.12 \times 10^{-6} \text{ m/s}$, $\Delta c = 0.0003c_s$)

(a) $k_0 = 0.1$ $c = c_s \sim 1.033c_s$ (c) $k_0 = 0.5$ $c = c_s \sim 1.018c_s$
 (b) $k_0 = 0.3$ $c = c_s \sim 1.025c_s$ (d) $k_0 = 0.7$ $c = c_s \sim 1.011c_s$

四、结果和讨论

本文用有限元数值模拟了浮区中的对流扩散和凝固/熔化界面形状,着重分析了对流和相变界面形状对浓度场的影响.与文献[4]相比,本文计算了相变对流的影响,考虑了非

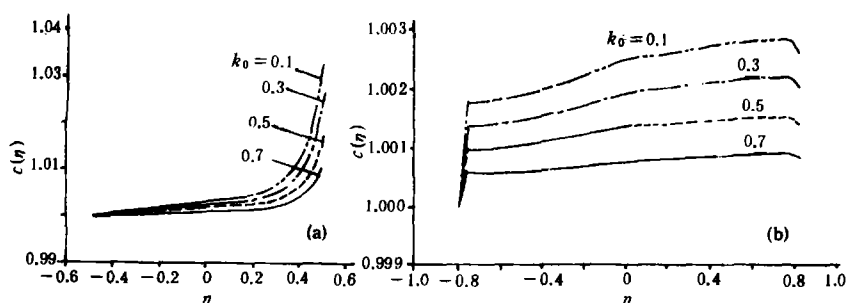


图 7 (a) 不同分凝系数时,中心轴上的浓度分布

(b)不同分凝系数时,自由面上的浓度分布

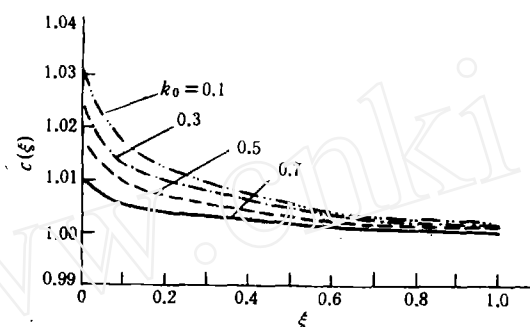


图 8 不同分凝系数时,凝固界面处沿半径方向的浓度分布

平面的相变界面对对流涡的不对称所带来的不同. 由于相变界面的影响,在凝固界面处,我们得到了更陡的浓度分布. 在较大生长速度条件下,熔区中基本上只有单一流向的涡胞,所以在加热线圈附近,不会存在文献[4]给出的浓度跳跃. 存在径向分凝,分凝程度随生长速度呈指数变化,太大的生长速度对杂质掺和的均匀性不利. 考虑到相变对流后,凝固界面的掺杂分布将相对地更加不均匀,这对于具体的晶体生长过程是不利的. 另外要注意的是,在较大生长速度条件下,凝固边界比较平坦,熔化界面比较尖凸.

本文采用的数值方法是所谓的“迎风有限元”格式,对相变界面采用了“伪不定常”迭代计算,所得结果与文献[12]和[13]进行了比较,结果正确合理.

最后,作者们感谢与唐泽眉和游仁然所进行的有益讨论.

参 考 文 献

- [1] B. Feuerbacher, H. Hamacher and R. J. Naumann, *Materials Sciences in Space*, Springer-Verlag Berlin, 1986.
- [2] 唐泽眉,李家春,力学学报, 23, 149(1991).
- [3] B. Pamplin, *Crystal Growth*, Pergamon Press, New York, 1975.
- [4] R. R. You and W. R. Hu, IAF-91-395, (1991).
- [5] H. E. Huppert, *J. Fluid Mech.*, 212, 209(1990).
- [6] V. G. Levich, *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice-Hall, London, 1962.
- [7] Ch. E. Chang and W. R. Wilcox, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 9, (1976), 355.
- [8] Ch. -H. Chun, *J. Crystal Growth*, 48, 600(1980).

- [9] J. C. Heinrich, *Int. J. Numer. Methods Eng.*, **20**, 447(1984).
- [10] B. Xiong, Z. M. Tang and W. R. Hu, *Microgravity, Science & Technology*, **125**, 149(1992).
- [11] J. Zheng, Y. Kamotani and S. Ostrach, AIAA 90-0318, 28th Aerospace Sciences Meeting, Jan. 8-11, 1990/Reno, Nevada.
- [12] J. L. and R. A. Brown, *J. Crystal Growth*, **75**, 367(1986).
- [13] C. W. Lan and Sindo Kou, *J. Crystal Growth*, **108**, 351(1991).
- [14] 胡文瑞,唐泽眉,中国科学, **A2**, 169(1990).
- [15] F. Preisser, D. Schwabe and A. Scharmann, *J. Fluid Mech.*, **126**, 545(1983).
- [16] S. Ostrach, Y. Kamotani and C. L. Lai, *Physicochemical Hydrodynamics*, **6**, 585(1985).
- [17] J. Y. Murthy and Peter Lee, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **31**, 1923(1988).
- [18] Ch. J. Chang and R. A. Brown, *J. Crystal Growth*, **63**, 3-3(1983).
- [19] J. C. Heinrich, P. S. Huyakorn and O. C. Zienkiewicz, *Int. J. Numer. Methods Eng.*, **11**, 131(1977).

Effects of Phase and Thermocapillary Convections on Segregation in Floating Zone

Xiong Bin and Hu Wenrui

Institute of Mechanics, Academia Sinica Beijing 100080

(Received 13 November 1991; revised manuscript received 21 October 1992)

Abstract

Floating zone crystal growth under microgravity condition, which is associated with thermocapillary convection, phase change convection, thermal diffusion and solute diffusion, is investigated for segregation of semiconductor growth process by 'up-wind' finite element methods. The streamlines, isotherms, concentration field, phase change interfaces and especially segregation process are analyzed for different typical control parameters. The results show that the phase change convection which has obviously influence on the segregation process makes the dopant concentration increase at the solidification interface. Furthermore, the greater the growth rate, the flatter the solidification interface, the slanter the melting interface and the more intensified the segregation.

PACC: 4725Q, 8110H, 6822, 6810